



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C10M 143/04 // C10N 20:20, 20:04, 30:02</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/34420</p> <p>(43) 国際公開日 2000年6月15日(15.06.00)</p>						
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP99/06868</p> <p>(22) 国際出願日 1999年12月8日(08.12.99)</p> <p>(30) 優先権データ</p> <table border="0"> <tr> <td>特願平10/350279</td> <td>1998年12月9日(09.12.98)</td> <td>JP</td> </tr> <tr> <td>特願平10/350280</td> <td>1998年12月9日(09.12.98)</td> <td>JP</td> </tr> </table> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 三井化学株式会社(MITSUI CHEMICALS, INC.)(JP/JP) 〒100-6070 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号 Tokyo, (JP) ザ ルブリゾル コーポレーション (THE LUBRIZOL CORPORATION)(US/US) 44092 オハイオ州 ウィクリフ レークランド プールバード 29400 Ohio, (US)</p> <p>(72) 発明者; および</p> <p>(75) 発明者/出願人 (米国についてののみ) 岡田圭司(OKADA, Keiji)(JP/JP) 〒740-0061 山口県玖珂郡和木町和木六丁目1番2号 三井化学株式会社内 Yamaguchi, (JP) 金重良輔(KANESHIGE, Ryouusuke)(JP/JP) 〒299-0108 千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学株式会社内 Chiba, (JP)</p>		特願平10/350279	1998年12月9日(09.12.98)	JP	特願平10/350280	1998年12月9日(09.12.98)	JP	<p>(74) 代理人 鈴木俊一郎(SUZUKI, Shunichiro) 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁目13番6号 五反田山崎ビル6F 鈴木国際特許事務所 Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 BR, CN, IN, JP, KR, SG, US, 欧州特許 (BE, DE, ES, FR, GB, IT, NL, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>
特願平10/350279	1998年12月9日(09.12.98)	JP						
特願平10/350280	1998年12月9日(09.12.98)	JP						
<p>(54)Title: VISCOSITY MODIFIER FOR LUBRICATING OIL AND LUBRICATING OIL COMPOSITION</p> <p>(54)発明の名称 潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物</p> <p>(57) Abstract</p> <p>A viscosity modifier for lubricating oils which is capable of giving a lubricating oil composition excellent in low-temperature properties; and a lubricating oil composition which contains the viscosity modifier and has excellent low-temperature properties. The modifier comprises: an ethylene/propylene copolymer (A) which has a density of 857 to 882 kg/m³, an Mw of 80,000 to 400,000, and an Mw/Mn of 2.3 or lower and in which the density (D: kg/m³) and the melting point (Tm: °C) satisfy the relationship Tm=1.247xD-1037; an ethylene/propylene copolymer (B) which has an ethylene content of 70 to 79 wt.%, an Mw of 80,000 to 250,000, excluding 250,000, an Mw/Mn of 2.3 or lower, and a Tm of 15 to 60 °C and in which the ethylene content (E: wt.%) and the melting point (Tm: °C) satisfy the relationship 3.44xE-206=Tm; or an ethylene/propylene copolymer (C) which has an ethylene content of 70 to 79 wt.%, an Mw of 250,000 to 400,000, an Mw/Mn of 2.3 or lower, and a Tm of 15 to 60 °C and in which the ethylene content (E: wt.%) and the melting point (Tm: °C) satisfy the relationship 3.44xE-204=Tm. The composition comprises a combination of any of the ethylene/propylene copolymers (A), (B), and (C) with a lube base oil (D) and optionally contains a pour point depressant (E).</p>								

(57)要約

本発明は、低温特性に優れた潤滑油組成物が得られるような潤滑油用粘度調整剤および該粘度調整剤を含有する低温特性に優れた潤滑油組成物を得ようとするものであって、潤滑油用粘度調整剤は、密度が $857 \sim 882 \text{ kg/m}^3$ 、 M_w が $80,000 \sim 400,000$ 、 M_w/M_n が 2.3 以下、密度 ($D: \text{kg/m}^3$) と融点 ($T_m: ^\circ\text{C}$) とが $T_m \leq 1.247 \times D - 1037$ を満たすエチレン・プロピレン共重合体 (A)、またはエチレン含量が 70 ~ 79 重量%、 M_w が 80,000 以上かつ 250,000 未満、 M_w/M_n が 2.3 以下、 T_m が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ 、エチレン含量 ($E: \text{重量}\%$) と、融点 ($T_m: ^\circ\text{C}$) とが $3.44 \times E - 206 \geq T_m$ を満たすエチレン・プロピレン共重合体 (B)、またはエチレン含量が 70 ~ 79 重量%、 M_w が 250,000 ~ 400,000、 M_w/M_n が 2.3 以下、 T_m が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ 、エチレン含量 ($E: \text{重量}\%$) と、融点 ($T_m: ^\circ\text{C}$) とが $3.44 \times E - 204 \geq T_m$ を満たすエチレン・プロピレン共重合体 (C) からなる。また潤滑油組成物は、上記エチレン・プロピレン共重合体 (A)、(B) または (C) のいずれかと、潤滑油基剤 (D) と、必要に応じて流動点降下剤 (E) とを含有する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロバキア
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	リトアニア	SN	セネガル
BF	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BG	ブルガリア	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャード
BJ	ベナン	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BR	ブラジル	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BS	バハマ	GW	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
CA	カナダ	HR	クロアチア	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
CC	中東アフリカ	HU	ハンガリー		共和国	TR	トルコ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CH	スイス	IE	アイルランド	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MR	モリタニア	UG	ウガンダ
CM	カメルーン	IN	インド	MW	マラウイ	US	米国
CN	中国	IS	アイスランド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CY	キプロス	JP	日本	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
DZ	アルジェリア	KE	ケニア	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
DE	ドイツ	KG	キルギスタン	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
DK	デンマーク	KR	韓国	PL	ポーランド		
				PT	ポルトガル		
				RO	ルーマニア		

明 細 書

潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物

5

技術分野

本発明は潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物に関し、さらに詳しくは、低温特性に優れた潤滑油組成物が得られるような潤滑油用粘度調整剤およびこの粘度調整剤を含む潤滑油組成物に関する。

10

背景技術

石油製品は一般に温度が変化すると粘度が大きく変化するが、例えば自動車用などの潤滑油はこの粘度の温度依存性が小さいことが好ましい。このため近年では、潤滑油の温度依存性を小さくする目的で、粘度指数向上効果を有する粘度調整剤としてエチレン・ α -
15 オレフィン共重合体が広く用いられている。

また潤滑油は、低温になると潤滑油中のワックス分が結晶固化し流動性を失うため、この固化温度を下げるために潤滑油には流動点降下剤も含まれている。流動点降下剤は、潤滑油中のワックス分が結晶化することによる3次元ネットワークの形成を阻害し潤滑油の
20 流動点を低下させる。

ところで粘度指数向上効果を有する粘度調整剤と、流動点降下剤とを含む潤滑油の低温特性の中で、高せん断速度下における粘度は、潤滑油基剤と、粘度調整剤との相溶性で決まるが、低せん断速度下における粘度は、流動点降下剤の影響を強く受ける。また特定の組

成のエチレン・ α -オレフィン共重合を粘度調整剤として用いると、流動点降下剤との相互作用により、流動点降下剤の効果を著しく減ずることが知られている(US 3,697,429号、US 3,551,336号明細書参照)。

- 5 このため潤滑油、特に低温特性に優れることが要求される潤滑油に配合される粘度調整剤には、粘度指数向上効果に優れるとともに、流動点降下剤の働きを阻害しないことが求められる。

このような要求を満たす粘度調整剤としては、例えば特公平6-96624号公報には、かつ分子内のエチレン単位と α -オレフィン
10 単位の分布が不均一であるエチレン・ α -オレフィン共重合体であって、エチレン含量が30～80重量%であり、重量平均分子量が20,000～750,000であり、 M_w/M_n が2未満である共重合体が開示されている。

- 本発明者らは、上記のような従来技術に鑑み鋭意検討した結果、
15 密度、分子量、分子量分布、融点が特定の範囲内にあり、密度と融点とが特定の関係を満たすようなエチレン・プロピレン共重合体、および、エチレン含量、分子量、分子量分布、融点が特定の範囲内にあり、エチレン含量と融点とが特定の関係を満たすエチレン・プロピレン共重合体は、潤滑油に配合した場合に粘度指数向上効果に
20 優れるとともに、流動点降下剤の働きを阻害しないことを見出して本発明を完成するに至った。

なお、上記公告公報に開示されているエチレン・ α -オレフィン共重合体は、本発明で特定するエチレン・プロピレン共重合体のエチレン含量と融点との関係式および、エチレン・プロピレン共重合体

の密度と融点との関係式を満たさない。

発明の目的

本発明は、特定のエチレン・プロピレン共重合体からなり低温特性に優れた潤滑油組成物が得られるような潤滑油用粘度調整剤および該粘度調整剤を含有する低温特性に優れた潤滑油組成物を提供することを目的としている。

発明の開示

10 本発明の一の態様に係る潤滑油用粘度調整剤は、下記 (a-1) ないし (a-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (A) からなることを特徴としている；

(a-1) 密度が $857 \sim 882 \text{ kg/m}^3$ の範囲にあること、

(a-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が $80,000 \sim 400,000$ の範囲にあること、

(a-3) 分子量分布を示す指標である M_w/M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(a-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ の範囲にあること、

(a-5) 密度 ($D : \text{kg/m}^3$) と、示差走査型熱量計で測定した融点 ($T_m : ^\circ\text{C}$) とが下記の関係式 (I)

$$T_m \leq 1.247 \times D - 1037 \quad \cdots (I)$$

を満たすこと。

また本発明の他の態様に係る潤滑油用粘度調整剤は、下記 (b-1) ないし (b-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (B) からなることを特徴としている；

(b-1) エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合が 70 ～ 79 重量 % の範囲にあること、

(b-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が 80,000 以上かつ 250,000 未満であること、

(b-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(b-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が 15 ～ 60 °C の範囲にあること、

(b-5) エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合 (E : 重量 %) と、示差走査型熱量計で測定した融点 (T_m : °C) とが下記の関係式 (II)

$$3.44 \times E - 206 \geq T_m \quad \cdots (II)$$

を満たすこと。

さらに本発明の他の態様に係る潤滑油用粘度調整剤は、下記 (c-1) ないし (c-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (C) からなることを特徴としている；

(c-1) エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合が 70 ～ 79 重量 % の範囲にあること、

(c-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が 250,000 ～ 400,000 の範囲

にあること、

(c-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(c-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が 15 ~ 60 °C の範囲にある
5 こと、

(c-5) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合 (E : 重量%) と、示差走査型熱量計で測定した融点 (T_m : °C) とが下記の関係式 (III)

$$3.44 \times E - 204 \geq T_m \quad \dots (III)$$

10 を満たすこと。

本発明に係る潤滑油用粘度調整剤は、潤滑油に配合すると低温特性に優れた潤滑油が得られる。

本発明の一の態様に係る潤滑油組成物には、

(A) 上記 (a-1) ないし (a-5) の特性を有するエチレン・プロピレン
15 共重合体と、

(D) 潤滑油基剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) を 1 ~ 20 重量% の割合で含むもの、

(B) 上記 (b-1) ないし (b-5) の特性を有するエチレン・プロピレン
20 共重合体と、

(D) 潤滑油基剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) を 1 ~ 20 重量% の割合で含むもの、

(C) 上記 (c-1) ないし (c-5) の特性を有するエチレン・プロピレン

共重合体と、

(D) 潤滑油基剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (C) を 1 ~ 20 重量% の割合で含むものがある。

5 また、本発明の他の態様に係る潤滑油組成物には、

(A) 上記 (a-1) ないし (a-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体と、

(D) 潤滑油基剤と、

(E) 流動点降下剤とを含有し、

10 上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) を 0.1 ~ 5 重量% の割合で含有し、上記流動点降下剤 (E) を 0.05 ~ 5 重量% の割合で含有するもの、

(B) 上記 (b-1) ないし (b-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体と、

15 (D) 潤滑油基剤と、

(E) 流動点降下剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) を 0.1 ~ 5 重量% の割合で含有し、上記流動点降下剤 (E) を 0.05 ~ 5 重量% の割合で含有するもの、

20 (C) 上記 (c-1) ないし (c-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体と、

(D) 潤滑油基剤と、

(E) 流動点降下剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (C) を 0.1 ~ 5 重量% の割合

で含有し、上記流動点降下剤（E）を0.05～5重量％の割合で含有するものがある。

本発明に係る潤滑油組成物は、低温特性に優れている。

5 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係る潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物について具体的に説明する。

潤滑油用粘度調整剤

本発明の一の態様に係る潤滑油用粘度調整剤は、以下のようなエ
10 チレン・プロピレン共重合体（A）からなる。

エチレン・プロピレン共重合体（A）

エチレン・プロピレン共重合体（A）は、エチレンから導かれる
繰返し単位と、プロピレンから導かれる繰返し単位とを含む。
エチレン・プロピレン共重合体（A）のエチレン含量は、密度が後
15 述する範囲内であれば特に限定されないが、通常70～79重量％、
好ましくは71～78重量％、より好ましくは72～78重量％、
さらに好ましくは73～77重量％、特に好ましくは75～77重
量％である。他は、プロピレンから導かれる繰返し単位等である。

本発明においてエチレン・プロピレン共重合体中のエチレン含量
20 は、「高分子分析ハンドブック」（日本分析化学会、高分子分析研究
懇談会 編、紀伊国屋書店 発行）に記載の方法に従って ^{13}C -NMR
で測定される。

またエチレン・プロピレン共重合体（A）は、本発明の目的を損
なわない範囲で、炭素原子数が4～20の α -オレフィン、環状オレ

フィン、ポリエチレン、芳香族オレフィンから選ばれる少なくとも一種のモノマー（以下「他のモノマー」ということがある。）から導かれる繰り返し単位を、例えば5重量%以下、好ましくは1重量%以下の割合で含有してもよい。

- 5 エチレン・プロピレン共重合体（A）は、密度が857～882 kg/m^3 、好ましくは859～880 kg/m^3 、より好ましくは860～880 kg/m^3 、さらに好ましくは864～875 kg/m^3 、特に好ましくは868～875 kg/m^3 の範囲にある。

- 密度が857 kg/m^3 以上であれば、十分な低温特性が得られ、
10 また密度が882 kg/m^3 以下であれば、エチレン・プロピレン共重合体のエチレンシーケンス部分の結晶化により、潤滑油組成物が低温時に一部ゼリー状になることがない。

密度は、ASTM D1505-85に準拠して測定される。

- エチレン・プロピレン共重合体（A）の分子量は、ゲルパーミエ
15 ーションクロマトグラフィー（GPC）で測定したポリスチレン換算の重量平均分子量で、80,000～400,000、好ましくは100,000～380,000、特に好ましくは120,000～350,000の範囲にある。

- 重量平均分子量が上記範囲内にあると、エチレン・プロピレン共
20 重合体は、粘度指数向上性能に優れる傾向がある。このため特定の潤滑油粘度を得るためのエチレン・プロピレン共重合体の必要量が少なくてもよく、また、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。

エチレン・プロピレン共重合体（A）の分子量が、GPCによるポリスチレン換算の重量平均分子量で80,000以上かつ250,

000未満、好ましくは100,000～240,000、さらに好ましくは120,000～240,000の範囲にあると、粘度指数向上性能に優れる傾向にある。このため特定の潤滑油粘度を得るためのエチレン・プロピレン共重合体(A)の必要量が少なくてよく、
5 また、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。

またエチレン・プロピレン共重合体(A)の分子量が、GPCによるポリスチレン換算の重量平均分子量で250,000～400,000、好ましくは260,000～380,000、さらに好ましくは270,000～350,000の範囲にあると、粘度指数向上
10 性能に優れる傾向にある。このため特定の潤滑油粘度を得るためのエチレン・プロピレン共重合体(A)の必要量が少なくてよく、また低温時にゼリー化が起こりにくい。

本発明においてGPCによるポリスチレン換算の重量平均分子量は、温度：140℃、溶媒：オルトジクロロベンゼンの条件下で測定される。
15

エチレン・プロピレン共重合体(A)は、分子量分布を示す指標である M_w/M_n (M_w ：重量平均分子量、 M_n ：数平均分子量)が、2.3以下、好ましくは1ないし2.2である。

分子量分布が2.3以下であれば、潤滑油基剤に配合したときに潤滑油粘度のせん断安定性が良好である。
20

エチレン・プロピレン共重合体(A)の融点は、DSCによる測定で、15～60℃、好ましくは25～50℃、さらに好ましくは25～45℃の範囲である。

融点はエチレン・プロピレン共重合体と流動点降下剤との相互作用

用の目安で、融点が $-5 \sim +10^{\circ}\text{C}$ 付近の領域のエチレンシーケンスをできるだけ含まなくすることが、流動点降下剤との相互作用を防止し、流動点降下剤の働きを阻害しないために重要である。

融点は、示差走査型熱量計（DSC）の吸熱曲線を求め、最大ピーク位置の温度を融点とした。具体的には、試料をアルミパンに詰め、 $10^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で 200°C まで昇温し、 200°C で5分間保持した後、 $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で -150°C まで降温し、次いで $10^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で昇温する際の、すなわち2ndランの吸熱曲線より求める。

エチレン・プロピレン共重合体（A）は、融点を示すDSCの吸熱曲線のピークが1つであることが好ましい。

エチレン・プロピレン共重合体（A）は、密度（ $D: \text{kg}/\text{m}^3$ ）と、示差走査型熱量計で測定した融点（ $T_m: ^{\circ}\text{C}$ ）とが下記の関係式（I）

$$T_m \leq 1.247 \times D - 1037 \quad \dots (I)$$

好ましくは下記の関係式（I-a）

$$T_m \leq 1.247 \times D - 1039 \quad \dots (I-a)$$

を満たしている。

式（I）および（I-a）は組成分布の目安であり、密度と融点との関係が式（I）の範囲内であれば、エチレン・プロピレン共重合体の組成分布が狭いため、融点が $-5 \sim +10^{\circ}\text{C}$ 付近であるエチレンシーケンスが相対的に増加して潤滑油の耐寒性が低下したり、高エチレン含量部分が存在することによる潤滑油の濁り（HAZE）等の問題を引き起こすことがない。

またエチレン・プロピレン共重合体（A）は、重量平均分子量が

80,000以上かつ250,000未満の場合、190℃で測定した0.01 rad/secの溶融粘度($\eta'_{0.01}$)と、8 rad/secの溶融粘度(η'_8)との比($\eta'_{0.01}/\eta'_8$)が1.0~2.0の範囲にあることが好ましく、重量平均分子量が250,000~400,000の場合、($\eta'_{0.01}/\eta'_8$)が1.5~2.5の範囲にあることが好ましい。

この溶融粘度比はエチレン・プロピレン共重合体が有する長鎖分岐の目安であり、この値が大きい程、長鎖分岐を多く含むことを意味する。エチレン・プロピレン共重合体の長鎖分岐が少ない場合、
10 このようなエチレン・プロピレン共重合体を含む潤滑油組成物は、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。

本発明のエチレン・プロピレン共重合体(A)において、共重合体を形成する全炭素原子に対する $\alpha\beta$ 炭素の割合(V:%)およびエチレン含量(E:重量%)は、特に制限はないが、V(%)と、
15 E(重量%)とが、下記式(IV)を満たすことも好ましい態様の一つである。

$$V > 10 - 0.1 \times E \quad \dots (IV)$$

ここで、 $\alpha\beta$ 炭素とは、エチレン・プロピレン共重合体の主鎖(または長分岐鎖)中の2級炭素であって、その2級炭素から最も近い
20 2個の3級炭素のうち、一方が α 位の炭素(主鎖中の隣接炭素)であり、他方が β 位の炭素(主鎖中の α 位の炭素に隣接する炭素)であるような炭素をいう。

上記パラメータV($\alpha\beta$ 炭素の割合)は、共重合体の ^{13}C -NMRを測定し、J. C. RandallによるMacromolecules(11, 33 (1978))に

記載の方法に従って求めることができる。

なお上記 (a-1) ないし (a-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (A) には、後述するエチレン含量と融点との関係式 (II) または (III) を満たすものがある。

- 5 エチレン・プロピレン共重合体 (A) (潤滑油用粘度調整剤) は、潤滑油基剤に配合したときに粘度指数の向上効果が大きく、流動点降下剤の効果を阻害することが少なく、潤滑油に濁りの問題を引き起こすことが少ない。このようなエチレン・プロピレン共重合体 (A) を潤滑油基材に配合すると、得られる潤滑油は、低温での流動性に
10 優れ、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。また、エチレン・プロピレン共重合体 (A) を粘度調整剤として用いると、次世代の北米潤滑油規格である GF-3 規格の低温特性の規格を満たしうるような潤滑油を得ることができる。なお潤滑油が GF-3 規格を満たすかどうかは、後述する CCS、MRV を測定することにより判断する
15 ことが可能である。

このようなエチレン・プロピレン共重合体 (A) は、エチレンとプロピレンと、必要に応じて他のモノマーをオレフィン重合用触媒の存在下に共重合させることにより得ることができる。

- 20 エチレン・プロピレン共重合体 (A) の製造に用いられるオレフィン重合用触媒としては、バナジウム、ジルコニウム、チタニウムなどの遷移金属の化合物と、有機アルミニウム化合物 (有機アルミニウムオキシ化合物) および／またはイオン化イオン性化合物とからなる触媒が使用できるが、これらのうち、

(a) 可溶性バナジウム化合物と有機アルミニウム化合物とからな

るバナジウム系触媒、あるいは

(b) 周期表第4族などから選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン性化合物と、からなるメタロセン系触媒が好ましく用いられ、これらのうちではバナジウム系触媒(a)が特に好ましく用いられる。これらの触媒については後述する。

さらに本発明の他の態様に係る潤滑油用粘度調整剤は、以下のようなエチレン・プロピレン共重合体(B)からなる。

エチレン・プロピレン共重合体(B)

10 エチレン・プロピレン共重合体(B)は、エチレンから導かれる繰返し単位と、プロピレンから導かれる繰返し単位とを含み、エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合(エチレン含量)が、通常70～79重量%、好ましくは71～78重量%、より好ましくは72～78重量%、さらに好ましくは73～77重量%、特に
15 75～77重量%の範囲にある。他は、プロピレンから導かれる繰返し単位等である。

エチレン含量が70重量%以上であれば、十分な低温特性が得られ、またエチレン含量が79重量%以下であれば、エチレン・プロピレン共重合体のエチレンシーケンス部分の結晶化により、潤滑油
20 組成物が低温時に一部ゼリー状になることがない。

またエチレン・プロピレン共重合体(B)は、本発明の目的を損なわない範囲で、炭素原子数が4～20の α -オレフィン、環状オレフィン、ポリエン、芳香族オレフィンから選ばれる少なくとも一種のモノマーから導かれる繰返し単位を、例えば5重量%以下、好

ましくは1重量%以下の割合で含有してもよい。

エチレン・プロピレン共重合体(B)の分子量は、GPCによるポリスチレン換算の重量平均分子量で80,000以上かつ250,000未満、好ましくは100,000~240,000、さらに好ましくは120,000~240,000の範囲にある。

重量平均分子量が上記範囲内にあると、エチレン・プロピレン共重合体は粘度指数向上性能に優れる傾向にある。このため特定の潤滑油粘度を得るためのエチレン・プロピレン共重合体の必要量が少なくよく、また、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。

10 エチレン・プロピレン共重合体(B)は、分子量分布を示す指標である M_w/M_n (M_w :重量平均分子量、 M_n :数平均分子量)が、2.3以下、好ましくは1~2.2である。

分子量分布が上記範囲内であれば、潤滑油基剤に配合したときに潤滑油粘度のせん断安定性が良好である。

15 エチレン・プロピレン共重合体(B)の融点は、示差走査型熱量計(DSC)による測定で、15~60℃、好ましくは25~50℃、さらに好ましくは25~45℃の範囲である。

融点はエチレン・プロピレン共重合体と流動点降下剤との相互作用の目安であり、融点が-5~+10℃付近の領域のエチレンシークENSをできるだけ含まなくすることが、流動点降下剤との相互作用を防止し、流動点降下剤の働きを阻害しないために重要である。

20 エチレン・プロピレン共重合体(B)は、融点を示すDSCの吸熱曲線のピークが1つであることが好ましい。

エチレン・プロピレン共重合体(B)は、エチレン含量(E:重

量%)と、DSCで測定した融点(T_m : $^{\circ}\text{C}$)とが以下の関係式(II)

$$3.44 \times E - 206 \geq T_m \quad \cdots (II)$$

好ましくは以下の関係式(II-a)

$$3.44 \times E - 208 \geq T_m \quad \cdots (II-a)$$

5 を満たしている。

式(II)および(II-a)は組成分布の目安であり、エチレン含量と融点との関係が式(II)の範囲にあると、エチレン・プロピレン共重合体の組成分布が狭いため、融点が $-5 \sim +10^{\circ}\text{C}$ 付近であるエチレンシーケンスが相対的に増加して潤滑油の耐寒性が低下したり、高エチレン含量部分が存在することによる潤滑油の濁り(HAZE)等の問題を引き起こすことがない。

10

またエチレン・プロピレン共重合体(B)は、 190°C で測定した 0.01 rad/sec の溶融粘度($\eta'_{0.01}$)と、 8 rad/sec の溶融粘度(η'_8)との比($\eta'_{0.01}/\eta'_8$)が $1.0 \sim 2.0$ の範囲にあることがより好ましい。

15

この溶融粘度比はエチレン・プロピレン共重合体が有する長鎖分岐の目安であり、この値が大きい程、長鎖分岐を多く含むことを意味する。エチレン・プロピレン共重合体の長鎖分岐が少ない場合、このようなエチレン・プロピレン共重合体を含む潤滑油組成物は、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。

20

本発明のエチレン・プロピレン共重合体(B)において、共重合体を形成する全炭素原子に対する $\alpha\beta$ 炭素の割合(V:%)およびエチレン含量(E:重量%)は、特に制限はないが、V(%)と、E(重量%)とが、下記式(IV)を満たすことも好ましい態様の一

つである。

$$V > 10 - 0.1 \times E \quad \dots (IV)$$

なお上記 (b-1) ないし (b-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (B) には、上述したような密度と融点との関係式 (I)

5 を満たすものがある。

エチレン・プロピレン共重合体 (B) (潤滑油用粘度調整剤) は、潤滑油基剤に配合したときに粘度指数の向上効果が大きく、流動点降下剤の効果を阻害することが少なく、潤滑油に濁りの問題を引き起こすことが少ない。このようなエチレン・プロピレン共重合体 (B)

10 を潤滑油基材に配合すると、得られる潤滑油は、低温での流動性に優れ、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。また、エチレン・プロピレン共重合体 (B) を粘度調整剤として用いると、次世代の北米潤滑油規格である GF-3 規格の低温特性の規格を満たしうるような潤滑油を得ることができる。なお潤滑油が GF-3 規格を満たすかどうかは、後述する CCS、MRV を測定することにより判断することが可能である。

このようなエチレン・プロピレン共重合体 (B) は、エチレンとプロピレンと、必要に応じて他のモノマーとをオレフィン重合用触媒の存在下に共重合させることにより得ることができる。

20 エチレン・プロピレン共重合体 (B) の製造に用いられるオレフィン重合用触媒としては、バナジウム、ジルコニウム、チタニウムなどの遷移金属の化合物と、有機アルミニウム化合物 (有機アルミニウムオキシ化合物) および／またはイオン化イオン性化合物とからなる触媒が使用できるが、これらのうち、

(a) 可溶性バナジウム化合物と有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒、あるいは

(b) 周期表第4族などから選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン性化合物と、からなるメタロセン系触媒が好ましく用いられ、これらのうちではバナジウム系触媒(a)が特に好ましく用いられる。これらの触媒については後述する。

さらに本発明の他の態様に係る潤滑油用粘度調整剤は、以下のようなエチレン・プロピレン共重合体(C)からなる。

10 エチレン・プロピレン共重合体(C)

エチレン・プロピレン共重合体(C)は、エチレンから導かれる繰返し単位と、プロピレンから導かれる繰返し単位とを含み、エチレン含量が、通常70～79重量%、好ましくは71～78重量%、より好ましくは72～78重量%、さらに好ましくは73～77重量%、特に好ましくは75～77重量%の範囲にある。他は、プロピレンから導かれる繰返し単位および後述する他のモノマーから導かれる繰返し単位である。

エチレン含量が70重量%以上であれば、十分な低温特性が得られ、またエチレン含量が79重量%以下であれば、エチレン・プロピレン共重合体のエチレンシーケンス部分の結晶化により、潤滑油組成物が低温時に一部ゼリー状になることがない。

またエチレン・プロピレン共重合体(C)は、本発明の目的を損なわない範囲で、炭素原子数が4～20の α オレフィン、環状オレフィン、ポリエン、芳香族オレフィンから選ばれる少なくとも一種

のモノマーから導かれる繰返し単位を、例えば5重量%以下、好ましくは1重量%以下の割合で含有してもよい。

エチレン・プロピレン共重合体(C)の分子量は、GPCによるポリスチレン換算の重量平均分子量で250,000~400,000、
5 0、好ましくは260,000~380,000、さらに好ましくは270,000~350,000の範囲にある。

重量平均分子量が上記範囲内にあると、エチレン・プロピレン共重合体は、粘度指数向上性能に優れる傾向にある。このため特定の潤滑油粘度を得るためのエチレン・プロピレン共重合体の必要量が
10 少なくてよく、また低温時にゼリー化が起こりにくい。

エチレン・プロピレン共重合体(C)は、分子量分布を示す指標である M_w/M_n が、2.3以下、好ましくは1~2.2である。

分子量分布が上記範囲にあると、潤滑油基剤に配合したときに潤滑油粘度のせん断安定性が良好である。

15 エチレン・プロピレン共重合体(C)の融点は、DSCによる測定で、15~60℃、好ましくは25~50℃、さらに好ましくは25~45℃の範囲である。

融点はエチレン・プロピレン共重合体と流動点降下剤との相互作用の目安であり、融点が-5~+10℃付近の領域のエチレンシ
20 ケンスをできるだけ含まなくすることが、流動点降下剤との相互作用を防止し、流動点降下剤の働きを阻害しないために重要である。

エチレン・プロピレン共重合体(C)は、融点を示すDSCの吸熱曲線のピークが1つであることが好ましい。

エチレン・プロピレン共重合体(C)は、エチレン含量(E:重

量%)と、DSCで測定した融点(T_m :℃)とが以下の関係式(III)

$$3.44 \times E - 204 \geq T_m \quad \dots (III)$$

好ましくは以下の関係式(III-a)

$$3.44 \times E - 206 \geq T_m \quad \dots (III-a)$$

5 を満たしている。

式(III)および(III-a)は組成分布の目安であり、エチレン含量と融点との関係が式(III)の範囲にあると、エチレン・プロピレン共重合体の組成分布が狭いため、融点が $-5 \sim +10$ ℃付近であるエチレンシーケンスが相対的に増加して潤滑油の耐寒性が低下したり、高エチレン含量部分が存在することによる潤滑油の濁り(HAZE)等の問題を引き起こすことがない。

またエチレン・プロピレン共重合体(C)は、 190 ℃で測定した 0.01 rad/secの溶融粘度($\eta'_{0.01}$)と、 8 rad/secの溶融粘度(η'_8)との比($\eta'_{0.01}/\eta'_8$)が $1.5 \sim 2.5$ の範囲にあることがより好ましい。

この溶融粘度比はエチレン・プロピレン共重合体が有する長鎖分岐の目安であり、この値が大きい程、長鎖分岐を多く含むことを意味する。エチレン・プロピレン共重合体の長鎖分岐が少ない場合、このようなエチレン・プロピレン共重合体を含む潤滑油組成物は、
20 潤滑油粘度のせん断安定性がより高い。

本発明のエチレン・プロピレン共重合体(C)において、共重合体を形成する全炭素原子に対する $\alpha\beta$ 炭素の割合(V:%)およびエチレン含量(E:重量%)は、特に制限はないが、V(%)と、E(重量%)とが、下記式(IV)を満たすことも好ましい態様の一

つである。

$$V > 10 - 0.1 \times E \quad \dots (IV)$$

なお上記 (c-1) ないし (c-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (C) には、上述したような密度と融点との関係式 (I) を満たすものがある。

エチレン・プロピレン共重合体 (C) (潤滑油用粘度調整剤) は、潤滑油基剤に配合したときに粘度指数の向上効果が大きく、流動点降下剤の効果を阻害することが少なく、潤滑油に濁りの問題を引き起こすことが少ない。このようなエチレン・プロピレン共重合体 (C) を潤滑油基材に配合すると、得られる潤滑油は、低温での流動性に優れ、潤滑油粘度のせん断安定性が高い。また、エチレン・プロピレン共重合体 (C) を粘度調整剤として用いると、次世代の北米潤滑油規格である GF-3 規格の低温特性の規格を満たしうるような潤滑油を得ることができる。なお潤滑油が GF-3 規格を満たすかどうかは、後述する CCS、MRV を測定することにより判断することが可能である。

このようなエチレン・プロピレン共重合体 (C) は、エチレンとプロピレンと、必要に応じて他のモノマーとをオレフィン重合用触媒の存在下に共重合させることにより得ることができる。

エチレン・プロピレン共重合体 (C) の製造に用いられるオレフィン重合用触媒としては、バナジウム、ジルコニウム、チタニウムなどの遷移金属の化合物と、有機アルミニウム化合物 (有機アルミニウムオキシ化合物) および／またはイオン化イオン性化合物とからなる触媒が使用できるが、これらのうち、

(a) 可溶性バナジウム化合物と有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒、あるいは

(b) 周期表第4族などから選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン

5 性化合物と、からなるメタロセン系触媒が好ましく用いられ、バナジウム系触媒(a)が特に好ましく用いられる。

オレフィン重合用触媒

次に上記エチレン・プロピレン共重合体(A)、(B)または(C)の製造に用いられるオレフィン重合用触媒について説明する。

10 エチレン・プロピレン共重合体(A)の製造には、

(a) 可溶性バナジウム化合物と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒、あるいは

(b) 周期表第4族などから選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン

15 性化合物とからなるメタロセン系触媒が好ましく用いられ、

(a-1) 可溶性バナジウム化合物(v-1)と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒がより好ましく、

(a-2) 可溶性バナジウム化合物(v-2)と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒が特に好ましく用いられる。

20 エチレン・プロピレン共重合体(B)の製造には、

(a) 可溶性バナジウム化合物と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒、あるいは

(b) 周期表第4族などから選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン

性化合物とからなるメタロセン系触媒が好ましく用いられ、

(a-2) 可溶性バナジウム化合物 (v-2) と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒が特に好ましく用いられる。

エチレン・プロピレン共重合体 (C) の製造には、

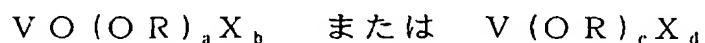
- 5 (a) 可溶性バナジウム化合物 (v-1) と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒、あるいは

(b) 周期表第4族などから選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン性化合物と、からなるメタロセン系触媒が好ましく用いられ、

- 10 (a-1) 可溶性バナジウム化合物 (v-1) と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒がより好ましく、
(a-2) 可溶性バナジウム化合物 (v-2) と、有機アルミニウム化合物とからなるバナジウム系触媒が特に好ましく用いられる。

可溶性バナジウム化合物 (v-1)

- 15 上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) または (C) の製造に好ましく用いられるバナジウム系触媒 (a-1) を形成する可溶性バナジウム化合物 (v-1) は、具体的には、下記一般式で表される。



- 20 式中、R はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基などの炭化水素基を示し、X はハロゲン原子を示し、a、b、c、d はそれぞれ $0 \leq a \leq 3$ 、 $0 \leq b \leq 3$ 、 $2 \leq a + b \leq 3$ 、 $0 \leq c \leq 4$ 、 $0 \leq d \leq 4$ 、 $3 \leq c + d \leq 4$ を満たす。

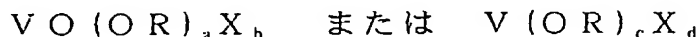
上記一般式で表される可溶性バナジウム化合物 (v-1) としては、具体的には、

VOCl_3 、 $\text{VO}(\text{OCH}_3)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_{1.5}\text{Cl}_{1.5}$ 、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2\text{Cl}$ 、 $\text{VO}(\text{O n-C}_3\text{H}_7)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{O iso-C}_3\text{H}_7)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{O n-C}_4\text{H}_9)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{O iso-C}_4\text{H}_9)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{O sec-C}_4\text{H}_9)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{O t-C}_4\text{H}_9)\text{Cl}_2$ 、 $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ 、 VOBr_2 、 VCl_4 、 VOCl_2 、 $\text{VO}(\text{O n-C}_4\text{H}_9)_3$ 、 $\text{VOCl}_3 \cdot 2\text{OC}_8\text{H}_{17}\text{OH}$ などが挙げられる。

可溶性バナジウム化合物 (v-1) のなかでは、下記可溶性バナジウム化合物 (v-2) が好ましい。

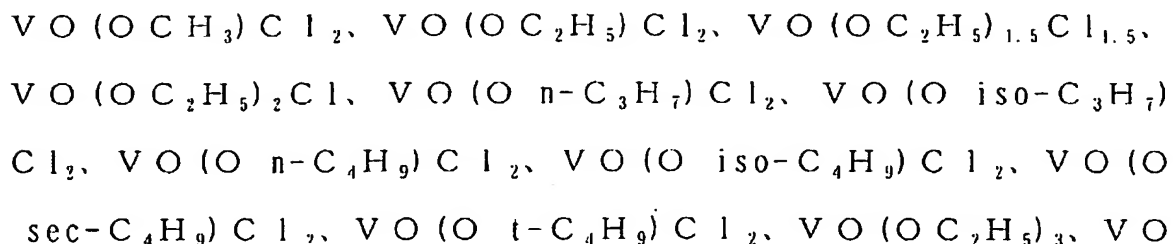
可溶性バナジウム化合物 (v-2)

10 上記エチレン・プロピレン共重合体 (A)、(B) または (C) の製造に好ましく用いられるバナジウム系触媒 (a-2) を形成する可溶性バナジウム化合物 (v-2) は、具体的には、下記一般式で表される。



15 式中、R はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基などの炭化水素基を示し、X はハロゲン原子を示し、a、b、c、d はそれぞれ $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $2 \leq a + b \leq 3$ 、 $0 < c \leq 4$ 、 $0 \leq d < 4$ 、 $3 \leq c + d \leq 4$ を満たす。前記 a は $1 < a \leq 3$ を満たすことが好ましく、前記 c は $1 < c \leq 3$ を満たすことが好ましい。

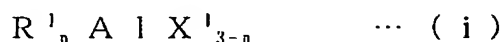
20 上記一般式で表される可溶性バナジウム化合物 (v-2) として具体的には、



($\text{O}-\text{n-C}_4\text{H}_9$)₃などが挙げられる。

有機アルミニウム化合物

上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) または (C) の製造に好ましく用いられるバナジウム系触媒 (a-1) を形成する有機アルミニウム化合物および上記エチレン・プロピレン共重合体 (A)、(B) または (C) の製造に好ましく用いられるバナジウム系触媒 (a-2) を形成する有機アルミニウム化合物は、下記一般式 (i) で表される。



10 式中、 R^1 は炭素原子数が 1 ～ 15、好ましくは 1 ～ 4 の炭化水素基を示し、 X^1 はハロゲン原子または水素原子を示し、 n は 1 ～ 3 である。

このような炭素原子数が 1 ～ 15 の炭化水素基としては、例えばアルキル基、シクロアルキル基またはアリール基が挙げられ、具体的には、メチル、エチル、 n -プロピル、イソプロピル、イソブチル、15 ペンチル、ヘキシル、オクチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、フェニル、トリルなどが挙げられる。

このような有機アルミニウム化合物として具体的には、以下のような化合物が挙げられる。

20 トリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリイソプロピルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリオクチルアルミニウム、トリ 2-エチルヘキシルアルミニウムなどのトリアルキルアルミニウム；

一般式 $(i-\text{C}_4\text{H}_9)_x \text{Al}_y (\text{C}_5\text{H}_{10})_z$ (式中、 x 、 y 、 z は正の数

であり、 $z \geq 2x$ である。) で表されるイソプレニルアルミニウムなどのアルケニルアルミニウム；

トリイソプロペニルアルミニウムなどのトリアルケニルアルミニウム；

- 5 ジメチルアルミニウムクロリド、ジエチルアルミニウムクロリド、ジイソプロピルアルミニウムクロリド、ジイソブチルアルミニウムクロリド、ジメチルアルミニウムブロミドなどのジアルキルアルミニウムハライド；

- 10 メチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキクロリド、イソプロピルアルミニウムセスキクロリド、ブチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキブロミドなどのアルキルアルミニウムセスキハライド；

- 15 メチルアルミニウムジクロリド、エチルアルミニウムジクロリド、イソプロピルアルミニウムジクロリド、エチルアルミニウムジブロミドなどのアルキルアルミニウムジハライド；

ジエチルアルミニウムヒドリド、ジブチルアルミニウムヒドリドなどのジアルキルアルミニウムヒドリド；

エチルアルミニウムジヒドリド、プロピルアルミニウムジヒドリドなどのアルキルアルミニウムジヒドリドなど。

20 メタロセン化合物

上記エチレン・プロピレン共重合体 (A)、(B) または (C) の製造に好ましく用いられるメタロセン系触媒 (b) を形成する周期表第 4 族から選ばれる遷移金属のメタロセン化合物は、具体的には、下記一般式 (ii) で表される。



式 (ii) 中、Mは周期表第4族から選ばれる遷移金属であり、具体的にジルコニウム、チタンまたはハフニウムであり、xは遷移金属の原子価を満たす数である。

- 5 Lは、遷移金属に配位する配位子であり、これらのうち少なくとも1個の配位子Lはシクロペンタジエニル骨格を有する配位子であり、このシクロペンタジエニル骨格を有する配位子は置換基を有していてもよい。

- シクロペンタジエニル骨格を有する配位子としては、例えば、
- 10 シクロペンタジエニル基、メチルシクロペンタジエニル基、エチルシクロペンタジエニル基、n-またはi-プロピルシクロペンタジエニル基、n-、i-、sec-またはtert-ブチルシクロペンタジエニル基、ヘキシルシクロペンタジエニル基、オクチルシクロペンタジエニル基、ジメチルシクロペンタジエニル基、トリメチルシクロペンタジエニル基、
- 15 テトラメチルシクロペンタジエニル基、ペンタメチルシクロペンタジエニル基、メチルエチルシクロペンタジエニル基、メチルプロピルシクロペンタジエニル基、メチルブチルシクロペンタジエニル基、メチルヘキシルシクロペンタジエニル基、メチルベンジルシクロペンタジエニル基、エチルブチルシクロペンタジエニル
- 20 基、エチルヘキシルシクロペンタジエニル基、メチルシクロヘキシルシクロペンタジエニル基などのアルキル置換またはシクロアルキル置換シクロペンタジエニル基、さらに

インデニル基、4,5,6,7-テトラヒドロインデニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

これらの基は、ハロゲン原子、トリアルキルシリル基などで置換されていてもよい。

これらのうちでは、アルキル置換シクロペンタジエニル基が特に好ましい。

- 5 上記一般式 (ii) で示される化合物が配位子 L としてシクロペンタジエニル骨格を有する基を 2 個以上有する場合には、そのうち 2 個のシクロペンタジエニル骨格を有する基同士は、エチレン、プロピレンなどのアルキレン基；イソプロピリデン、ジフェニルメチレンなどの置換アルキレン基；シリレン基またはジメチルシリレン基；
10 ジフェニルシリレン基、メチルフェニルシリレン基などの置換シリレン基などを介して結合されていてもよい。

- シクロペンタジエニル骨格を有する配位子以外の L としては、炭素原子数が 1 ~ 12 の炭化水素基、アルコキシ基、アリーロキシ基、スルホン酸含有基 ($-SO_3R^d$)、ハロゲン原子または水素原子（こ
15 中で、 R^d はアルキル基、ハロゲン原子で置換されたアルキル基、アリール基、ハロゲン原子で置換されたアリール基またはアルキル基で置換されたアリール基である。）などが挙げられる。

- 炭素原子数が 1 ~ 12 の炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基などが挙げられ、より具
20 体的には、

メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、ペンチル、ヘキシル、オクチル、デシル、ドデシルなどのアルキル基；

シクロペンチル、シクロヘキシルなどのシクロアルキル基；

フェニル、トリルなどのアリール基；

ベンジル、ネオフィルなどのアラルキル基が挙げられる。

また、アルコキシ基としては、メトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、イソプロポキシ、n-ブトキ、イソブトキシ、sec-ブトキシ、tert-ブトキシ、ペントキシ、ヘキソキシ、オクトキシなどが挙げられる。

アリーロキシ基としては、フェノキシなどが挙げられ、

スルホン酸含有基 ($-SO_3R^a$) としては、メタンスルホナト、p-トルエンスルホナト、トリフルオロメタンスルホナト、p-クロルベンゼンスルホナトなどが挙げられる。

ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

以下に、Mがジルコニウムであり、かつシクロペンタジエニル骨格を有する配位子を2個含むメタロセン化合物を例示する。

ビス(メチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド、
ビス(エチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド、
ビス(n-プロピルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド、
ビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、
ビス(4,5,6,7-テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリド
など。

また、上記のようなジルコニウム化合物においてジルコニウム金属を、チタニウム金属、ハフニウム金属に置き換えた化合物を挙げることができる。

また、上記エチレン・プロピレン共重合体(A)、(B)または(C)

の製造に好ましく用いられるメタロセン系触媒を形成するメタロセン化合物として下記一般式 (iii) で表される化合物を挙げることができる。

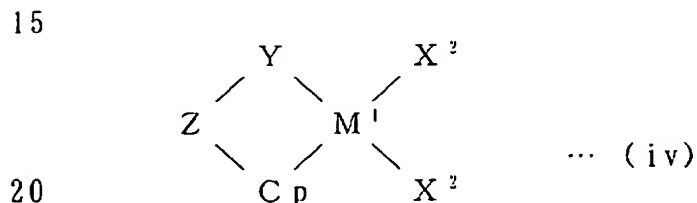


- 5 式 (iii) 中、 M^1 は、周期表第 4 族またはランタニド系列の金属である。

L^1 は、非局在化 π 結合基の誘導体であり、金属 M^1 活性サイトに拘束幾何形状を付与している。

- 10 X^2 は、互いに同一でも異なってもよく、水素、ハロゲン、または 20 以下の炭素を含有する炭化水素基、20 以下のケイ素含有するシリル基または 20 以下のゲルマニウムを含有するゲルミル基である。

このような一般式 (iii) で示される化合物のうちでも、下記一般式 (iv) で示される化合物が好ましい。



式中、 M^1 はチタン、ジルコニウムまたはハフニウムであり、 X^2 は、上記と同様である。

C_p は M^1 に π 結合しているシクロペンタジエニル基である。

- 25 Z は酸素、イオウ、ホウ素または周期表第 14 族の元素（例えばケイ素、ゲルマニウムまたは錫）である。

Y は窒素、リン、酸素またはイオウを含む配位子である。

また、ZとYとで縮合環を形成してもよい。

このような上記一般式 (iv) で示されるメタロセン化合物として具体的には、

5 [ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) シラン] チタンジクロリド、

[(t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) -1, 2-エタンジイル] チタンジクロリド、

[ジベンジル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) シラン] チタンジクロリド、

10 [ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) シラン] ジベンジルチタン、

[ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) シラン] ジメチルチタン、

15 [(t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) -1, 2-エタンジイル] ジベンジルチタン、

[(メチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) -1, 2-エタンジイル] ジネオペンチルチタン、

[(フェニルホスフィド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) メチレン] ジフェニルチタン、

20 [ジベンジル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル) シラン] ジベンジルチタン、

[ジメチル (ベンジルアミド) (η^5 -シクロペンタジエニル) シラン] ジ (トリメチルシリル) チタン、

[ジメチル (フェニルホスフィド) (テトラメチル- η^5 -シクロペン

タジエニル)シラン] ジベンジルチタン、

[(テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル)-1,2-エタンジイル]
ジベンジルチタン、

[2- η^5 -(テトラメチル-シクロペンタジエニル)-1-メチル-エタノ
5 レート(2-)] ジベンジルチタン、

[2- η^5 -(テトラメチル-シクロペンタジエニル)-1-メチル-エタノ
レート(2-)] ジメチルチタン、

[2-((4a, 4b, 8a, 9, 9a- η)-9H-フルオレン-9-イル)シクロヘキサノ
レート(2-)] ジメチルチタン、

10 [2-((4a, 4b, 8a, 9, 9a- η)-9H-フルオレン-9-イル)シクロヘキサノ
レート(2-)] ジベンジルチタンなどが挙げられる。

また上記のようなチタン化合物においてチタニウム金属を、ジル
コニウム金属、ハフニウム金属に置き換えた化合物を挙げることも
できる。

15 これらのメタロセン化合物は、1種単独でまたは2種以上組み合
わせて用いることができる。

本発明では、前記一般式(ii)で表されるメタロセン化合物とし
ては、中心の金属原子がジルコニウムであり、2個のシクロペンタ
ジエニル骨格を含む配位子を有するジルコノセン化合物が好ましく
20 用いられる。また前記一般式(iii)または(iv)で表されるメタロ
セン化合物としては、中心の金属原子がチタンであるチタノセン化
合物が好ましく用いられる。上記メタロセン化合物のなかでは、一
般式(iv)で表され中心の金属原子がチタンである化合物が特に好
ましい。

有機アルミニウムオキシ化合物

メタロセン系触媒（b）を形成する有機アルミニウムオキシ化合物は、従来公知のアルミノオキサンであってもよく、またベンゼン不溶性の有機アルミニウムオキシ化合物であってもよい。

- 5 従来公知のアルミノオキサンは、具体的には、下記一般式で表される。



- 10 （上記一般式において、Rはメチル、エチル、プロピル、ブチルなどの炭化水素基であり、好ましくはメチル、エチル、特に好ましくはメチルであり、mは2以上、好ましくは5～40の整数である。）

- ここで、このアルミノオキサンは式（OAl（R¹））で表されるアルキルオキシアルミニウム単位および式（OAl（R²））で表される
 15 アルキルオキシアルミニウム単位（ここで、R¹およびR²はRと同様の炭化水素基を例示することができ、R¹およびR²は相異なる基を表わす。）からなる混合アルキルオキシアルミニウム単位から形成されていてもよい。

イオン化イオン性化合物

- 20 メタロセン系触媒（b）を形成するイオン化イオン性化合物としては、ルイス酸、イオン性化合物などを例示することができる。

ルイス酸としては、BR₃（Rは、フッ素、メチル、トリフルオロメチルなどから選ばれる置換基を有していてもよいフェニル基またはフッ素である。）で示される化合物が挙げられ、例えば

トリフルオロボロン、

トリフェニルボロン、 トリス (4-フルオロフェニル) ボロン、 トリス (3, 5-ジフルオロフェニル) ボロン、 トリス (4-フルオロメチルフェニル) ボロン、 トリス (ペンタフルオロフェニル) ボロン、 トリス (p-トリル) ボロン、 トリス (o-トリル) ボロン、 トリス (3, 5-ジメチルフェニル) ボロンなどが挙げられる。

イオン性化合物としては、 トリアルキル置換アンモニウム塩、 N, N-ジアルキルアニリニウム塩、 ジアルキルアンモニウム塩、 トリアリールホスフォニウム塩などを挙げる事ができる。

10 具体的に、 トリアルキル置換アンモニウム塩としては、 例えば

トリエチルアンモニウムテトラ (フェニル) ホウ素、 トリプロピルアンモニウムテトラ (フェニル) ホウ素、 トリ (n-ブチル) アンモニウムテトラ (フェニル) ホウ素、 トリメチルアンモニウムテトラ (p-トリル) ホウ素、 トリメチルアンモニウムテトラ (o-トリル) ホウ素、 トリ
15 ブチルアンモニウムテトラ (ペンタフルオロフェニル) ホウ素、 トリプロピルアンモニウムテトラ (o, p-ジメチルフェニル) ホウ素、 トリブチルアンモニウムテトラ (m, m-ジメチルフェニル) ホウ素、 トリブチルアンモニウムテトラ (p-トリフルオロメチルフェニル) ホウ素、
トリ (n-ブチル) アンモニウムテトラ (o-トリル) ホウ素などが挙げら
20 れる。

N, N-ジアルキルアニリニウム塩としては、 例えば N, N-ジメチルアニリニウムテトラ (フェニル) ホウ素、 N, N-ジエチルアニリニウムテトラ (フェニル) ホウ素、 N, N-2, 4, 6-ペンタメチルアニリニウムテトラ (フェニル) ホウ素などが挙げられる。

ジアルキルアンモニウム塩としては、例えば

ジ(1-プロピル)アンモニウムテトラ(ペンタフルオロフェニル)ホウ素、ジシクロヘキシルアンモニウムテトラ(フェニル)ホウ素などが挙げられる。

- 5 さらにイオン性化合物として、トリフェニルカルベニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、N,N-ジメチルアニリニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、フェロセニウムテトラ(ペンタフルオロフェニル)ボレートなどを挙げることもできる。

- 10 またメタロセン系触媒を形成するに際しては、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン性化合物とともに前述した有機アルミニウム化合物を用いてもよい。

エチレン・プロピレン共重合体(A)の製法

- 15 上記エチレン・プロピレン共重合体(A)は、好ましくは上記のようなバナジウム系触媒(a-1)、好ましくはバナジウム系触媒(a-2)の存在下またはメタロセン系触媒(b)の存在下にエチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを、通常液相で共重合させて製造する。この際、重合溶媒として一般に炭化水素溶媒が用いられるが、液状のプロピレン等の α -オレフィンを用いてもよい。

- 20 重合の際に用いられる炭化水素溶媒としては、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、灯油などの脂肪族炭化水素およびこれらのハロゲン誘導体；シクロヘキサン、メチルシクロペンタン、メチルシクロヘキサンなどの脂環族炭化水素およびこれらのハロゲン誘導体；ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳

香族炭化水素およびクロロベンゼンなどのハロゲン誘導体などが用いられる。これらの炭化水素溶媒は、1種単独でまたは2種以上組み合わせる用いることができる。

エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーは、バッチ法、連続法のいずれの方法でも共重合することができるが、連続法で共重合することが好ましく、特に攪拌槽型反応器を用い連続法で共重合することが好ましい。共重合を連続法で実施するに際しては、上記触媒は例えば以下のような濃度で用いられる。

触媒としてバナジウム系触媒(a-1)が用いられる場合には、重合系内の可溶性バナジウム化合物(v-1)の濃度は、通常、0.01～5ミリモル／リットル（重合容積）、好ましくは0.05～3ミリモル／リットルである。この可溶性バナジウム化合物(v-1)は、重合系内に存在する可溶性バナジウム化合物(v-1)の濃度の10倍以下、好ましくは1～7倍、さらに好ましくは1～5倍の濃度で供給されることが望ましい。また有機アルミニウム化合物は、重合系内のバナジウム原子に対するアルミニウム原子のモル比(A1/V)で、通常2以上、好ましくは2～50、さらに好ましくは3～20の量で供給される。

可溶性バナジウム化合物(v-1)および有機アルミニウム化合物は、通常、上述の炭化水素溶媒および／または液状のプロピレンで希釈されて供給される。この際、該可溶性バナジウム化合物(v-1)は上述した濃度に希釈されることが望ましいが、有機アルミニウム化合物は重合系内における濃度のたとえば50倍以下の任意の濃度に調整して重合系内に供給されることが望ましい。

バナジウム系触媒 (a-1) の存在下に、エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合には、共重合反応は、通常、温度が $-50^{\circ}\text{C} \sim 100^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $-30^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ で、圧力が 0 を超えて 50 kg/cm^2 以下、好ましくは 0 を超えて 20 kg/cm^2 以下の条件下に行われる。上記重合条件は、連続重合法では一定であることが好ましい。

バナジウム系触媒 (a-2) の存在下に、エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合にも、上記と同様の触媒濃度、共重合条件が採用される。

また触媒としてメタロセン系触媒 (b) が用いられる場合には、重合系内のメタロセン化合物の濃度は、通常 $0.00005 \sim 0.1$ ミリモル/リットル (重合容積)、好ましくは $0.0001 \sim 0.05$ ミリモル/リットルである。また有機アルミニウムオキシ化合物は、重合系内のメタロセン化合物中の遷移金属に対するアルミニウム原子のモル比 (Al/遷移金属) で、 $1 \sim 10000$ 、好ましくは $10 \sim 5000$ となるような量で供給される。

イオン化イオン性化合物は、重合系内のメタロセン化合物に対するイオン化イオン性化合物のモル比 (イオン化イオン性化合物/メタロセン化合物) で、 $0.5 \sim 30$ 、好ましくは $1 \sim 25$ となるような量で供給される。

また有機アルミニウム化合物が用いられる場合には、通常、約 $0 \sim 5$ ミリモル/リットル (重合容積)、好ましくは約 $0 \sim 2$ ミリモル/リットルとなるような量で用いられる。

メタロセン系触媒 (b) の存在下に、エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合には、共重合反応は、通常、温度が $-20^{\circ}\text{C} \sim 150^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $0^{\circ}\text{C} \sim 120^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $0^{\circ}\text{C} \sim 100^{\circ}\text{C}$ で、圧力が 0 を超えて 80 kg/cm^2 以下、好ましくは 0 を超えて 50 kg/cm^2 以下の条件下に行われる。上記重合条件は、連続重合法では一定であることが好ましい。

反応時間（共重合が連続法で実施される場合には平均滞留時間）は、触媒濃度、重合温度などの条件によっても異なるが、通常、5 分～5 時間、好ましくは 10 分～3 時間である。

エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーは、上述のような特定組成のエチレン・プロピレン系共重合体 (A) が得られるような量で重合系に供給される。さらに共重合に際しては、水素などの分子量調節剤を用いることもできる。これにより重量平均分子量を $80,000 \sim 400,000$ に調整することができる。

上記のようにしてエチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させると、エチレン・プロピレン共重合体 (A) は通常これを含む重合液として得られる。この重合液は、常法により処理され、エチレン・プロピレン共重合体 (A) が得られる。

20 エチレン・プロピレン共重合体 (B) の製法

上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) は、好ましくは上記のようなバナジウム系触媒 (a-2) の存在下またはメタロセン系触媒 (b) の存在下にエチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを、通常液相で共重合させて製造する。この際、重合溶媒として一

般に炭化水素溶媒が用いられるが、液状のプロピレン等の α -オレフィンを用いてもよい。

重合の際に用いられる炭化水素溶媒としては、上記と同様のものが挙げられる。これら溶媒は、1種単独でまたは2種以上組み合わせ

5 せて用いることができる。

エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーは、バッチ法、連続法のいずれの方法でも共重合することができるが、連続法で共重合することが好ましく、特に攪拌槽型反応器を用い連続法で共重合することが好ましい。共重合を連続法で実施するに際して

10 は、上記触媒は例えば以下のような濃度で用いられる。

触媒としてバナジウム系触媒(a-2)が用いられる場合には、重合系内の可溶性バナジウム化合物(v-2)の濃度は、通常、0.01～5ミリモル／リットル（重合容積）、好ましくは0.05～3ミリモル／リットルである。この可溶性バナジウム化合物(v-2)は、重合系内に

15 存在する可溶性バナジウム化合物(v-2)の濃度の10倍以下、好ましくは1～7倍、さらに好ましくは1～5倍の濃度で供給されることが望ましい。また有機アルミニウム化合物は、重合系内のバナジウム原子に対するアルミニウム原子のモル比(A1/V)で、通常2以上、好ましくは2～50、さらに好ましくは3～20の量で供給

20 される。

可溶性バナジウム化合物(v-2)および有機アルミニウム化合物は、通常、上述の炭化水素溶媒および／または液状のプロピレンで希釈されて供給される。この際、該可溶性バナジウム化合物(v-2)は上述した濃度に希釈されることが望ましいが、有機アルミニウム化合物

は重合系内における濃度の例えば50倍以下の任意の濃度に調整して重合系内に供給されることが望ましい。

バナジウム系触媒(a-2)の存在下に、エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合には、共重合反応は、
5 通常、温度が $-50^{\circ}\text{C} \sim 100^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $-30^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ で、圧力が0を超えて 50 kg/cm^2 以下、好ましくは0を超えて 20 kg/cm^2 以下の条件下に行われる。上記重合条件は、連続重合法では一定であることが好ましい。

10 また触媒としてメタロセン系触媒(b)が用いられる場合には、重合系内のメタロセン化合物の濃度は、通常 $0.00005 \sim 0.1$ ミリモル/リットル(重合容積)、好ましくは $0.0001 \sim 0.05$ ミリモル/リットルである。また有機アルミニウムオキシ化合物は、重合系内のメタロセン化合物中の遷移金属に対するアルミニウム原
15 子のモル比(A1/遷移金属)で、 $1 \sim 10000$ 、好ましくは $10 \sim 5000$ となるような量で供給される。

イオン化イオン性化合物は、重合系内のメタロセン化合物に対するイオン化イオン性化合物のモル比(イオン化イオン性化合物/メタロセン化合物)で、 $0.5 \sim 30$ 、好ましくは $1 \sim 25$ となるよう
20 な量で供給される。

また有機アルミニウム化合物が用いられる場合には、通常、約 $0 \sim 5$ ミリモル/リットル(重合容積)、好ましくは約 $0 \sim 2$ ミリモル/リットルとなるような量で用いられる。

メタロセン系触媒(b)の存在下に、エチレンおよびプロピレン、

必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合には、共重合反応は、通常、温度が $-20^{\circ}\text{C} \sim 150^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $0^{\circ}\text{C} \sim 120^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $0^{\circ}\text{C} \sim 100^{\circ}\text{C}$ で、圧力が0を超えて 80 kg/cm^2 以下、好ましくは0を超えて 50 kg/cm^2 以下の条件下に
5 行われる。上記重合条件は、連続重合法では一定であることが好ましい。

反応時間（共重合が連続法で実施される場合には平均滞留時間）は、触媒濃度、重合温度などの条件によっても異なるが、通常、5分～5時間、好ましくは10分～3時間である。

10 エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーは、上述のような特定組成のエチレン・プロピレン系共重合体（B）が得られるような量で重合系に供給される。さらに共重合に際しては、水素などの分子量調節剤を用いることもできる。これにより重量平均分子量を $80,000$ 以上 $250,000$ 未満に調整することができる。
15 る。

上記のようにしてエチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させると、エチレン・プロピレン共重合体（B）は通常これを含む重合液として得られる。この重合液は、常法により処理され、エチレン・プロピレン共重合体（B）が得られる。

20 エチレン・プロピレン共重合体（C）の製法

上記エチレン・プロピレン共重合体（C）は、好ましくは上記のようなバナジウム系触媒（a-1）、よち好ましくはバナジウム系触媒（a-2）の存在下またはメタロセン系触媒（b）の存在下にエチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを、通常液相で共重合さ

せて製造する。この際、重合溶媒として一般に炭化水素溶媒が用いられるが、液状のプロピレン等の α -オレフィンを用いてもよい。

重合の際に用いられる炭化水素溶媒としては、上記と同様のものが挙げられる。これら溶媒は、1種単独でまたは2種以上組み合わせ
5 せて用いることができる。

エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーは、バッチ法、連続法のいずれの方法でも共重合することができるが、連続法で共重合することが好ましく、特に攪拌槽型反応器を用い連続法で共重合することが好ましい。共重合を連続法で実施するに際して
10 は、上記触媒は例えば以下のような濃度で用いられる。

触媒としてバナジウム系触媒(a-1)が用いられる場合には、重合系内の可溶性バナジウム化合物(v-1)の濃度は、通常、0.01～5ミリモル／リットル（重合容積）、好ましくは0.05～3ミリモル／リットルである。この可溶性バナジウム化合物(v-1)は、重合系内に
15 存在する可溶性バナジウム化合物(v-1)の濃度の10倍以下、好ましくは1～7倍、さらに好ましくは1～5倍の濃度で供給されることが望ましい。また有機アルミニウム化合物は、重合系内のバナジウム原子に対するアルミニウム原子のモル比(A1/V)で、通常2以上、好ましくは2～50、さらに好ましくは3～20の量で供給
20 される。

可溶性バナジウム化合物(v-1)および有機アルミニウム化合物は、通常、上述の炭化水素溶媒および／または液状のプロピレンで希釈されて供給される。この際、該可溶性バナジウム化合物(v-1)は上述した濃度に希釈されることが望ましいが、有機アルミニウム化合物

は重合系内における濃度のたとえば50倍以下の任意の濃度に調整して重合系内に供給されることが望ましい。

バナジウム系触媒(a-1)の存在下に、エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合には、共重合反応は、
5 通常、温度が $-50^{\circ}\text{C} \sim 100^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $-30^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ で、圧力が0を超えて 50 kg/cm^2 以下、好ましくは0を超えて 20 kg/cm^2 以下の条件下に行われる。上記重合条件は、連続重合法では一定であることが好ましい。

10 バナジウム系触媒(a-2)の存在下に、エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合にも、上記と同様の触媒濃度、共重合条件が採用される。

また触媒としてメタロセン系触媒(b)が用いられる場合には、重合系内のメタロセン化合物の濃度は、通常 $0.00005 \sim 0.1$
15 ミリモル/リットル(重合容積)、好ましくは $0.0001 \sim 0.05$ ミリモル/リットルである。また有機アルミニウムオキシ化合物は、重合系内のメタロセン化合物中の遷移金属に対するアルミニウム原子のモル比(A1/遷移金属)で、 $1 \sim 10000$ 、好ましくは $10 \sim 5000$ となるような量で供給される。

20 イオン化イオン性化合物は、重合系内のメタロセン化合物に対するイオン化イオン性化合物のモル比(イオン化イオン性化合物/メタロセン化合物)で、 $0.5 \sim 30$ 、好ましくは $1 \sim 25$ となるような量で供給される。

また有機アルミニウム化合物が用いられる場合には、通常、約0

～5ミリモル／リットル（重合容積）、好ましくは約0～2ミリモル／リットルとなるような量で用いられる。

メタロセン系触媒（b）の存在下に、エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合には、共重合反応は、
5 通常、温度が－20℃～150℃、好ましくは0℃～120℃、さらに好ましくは0℃～100℃で、圧力が0を超えて80kg/cm²以下、好ましくは0を超えて5.0kg/cm²以下の条件下に行われる。上記重合条件は、連続重合法では一定であることが好ましい。

- 10 反応時間（共重合が連続法で実施される場合には平均滞留時間）は、触媒濃度、重合温度などの条件によっても異なるが、通常、5分～5時間、好ましくは10分～3時間である。

- エチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーは、上述のような特定組成のエチレン・プロピレン系共重合体（C）が得ら
15 れるような量で重合系に供給される。さらに共重合に際しては、水素などの分子量調節剤を用いることもできる。これにより重量平均分子量を250,000～400,000に調整することができる。

- 上記のようにしてエチレンおよびプロピレン、必要に応じて他のモノマーを共重合させると、エチレン・プロピレン共重合体（C）
20 は通常これを含む重合液として得られる。この重合液は、常法により処理され、エチレン・プロピレン共重合体（C）が得られる。

潤滑油組成物

本発明に係る潤滑油組成物には、

上記エチレン・プロピレン共重合体（A）、（B）または（C）の

いずれかと、

潤滑油基剤 (D) と

を含有するものがあり、また

上記エチレン・プロピレン共重合体 (A)、(B) または (C) の

5 5 いずれかと、

潤滑油基剤 (D) と、

流動点降下剤 (E) とを含有するものもある。

まず本発明に係る潤滑油組成物を形成する各成分について説明する。

10 (D) 潤滑油基剤

本発明で用いられる潤滑油基剤としては、鉱物油、およびポリ α -オレフィン、ポリオールエステル、ポリアルキレングリコール等の合成油が挙げられ、鉱物油または鉱物油と合成油とのブレンドが好ましく用いられる。鉱物油は一般に脱ワックス等の精製工程を経て
15 用いられ、精製の仕方により幾つかの等級があるが、一般に 0.5 ~ 10% のワックス分を含む鉱物油が使用される。また 40℃ における動粘度が 10 ~ 200 cSt のものが一般的に使用される。

(E) 流動点降下剤

本発明で用いられる流動点降下剤としては、アルキル化ナフタレン、メタクリル酸アルキルの (共) 重合体、アクリル酸アルキルの
20 (共) 重合体、フマル酸アルキルと酢酸ビニルとの共重合体、 α -オレフィン重合体、 α -オレフィンとスチレンとの共重合体等が挙げられるが、中でも、メタクリル酸アルキルの (共) 重合体、アクリル酸アルキルの (共) 重合体が好適に用いられる。

本発明に係る潤滑油組成物には、上述したようなエチレン・プロピレン共重合体（A）と、潤滑油基剤（D）とを含有し、該潤滑油組成物中にエチレン・プロピレン共重合体（A）を1～20重量%、好ましくは5～10重量%の量（残分は潤滑油基剤（D）および後述の配合剤）で含有するものがある。このような潤滑油組成物は、潤滑油基剤（D）と、エチレン・プロピレン共重合体（A）との合計量100重量%に対し、潤滑油基剤（D）が80～99重量%、エチレン・プロピレン共重合体（A）が1～20重量%であることがより好ましい。

10 エチレン・プロピレン共重合体（A）と、潤滑油基剤（D）とを含有する潤滑油組成物は、温度依存性が小さく低温特性に優れる。この潤滑油組成物は、そのまま潤滑油用途に使用することができ、またこの潤滑油組成物にさらに潤滑油基剤、流動点降下剤などを配合して潤滑油用途に使用することもできる。

15 また本発明に係る潤滑油組成物には、上述したようなエチレン・プロピレン共重合体（B）と、潤滑油基剤（D）とを含有し、該潤滑油組成物中にエチレン・プロピレン共重合体（B）を1～20重量%、好ましくは5～10重量%の量（残分は潤滑油基剤（D）及び後述の配合剤）で含有するものがある。このような潤滑油組成物は、エチレン・プロピレン共重合体（B）と、潤滑油基剤（D）との合計量100重量%に対し、潤滑油基剤（D）が80～99重量%、エチレン・プロピレン共重合体（B）が1～20重量%であることがより好ましい。

エチレン・プロピレン共重合体（B）と、潤滑油基剤（D）とを

含有する潤滑油組成物は、温度依存性が小さく低温特性に優れる。
この潤滑油組成物は、そのまま潤滑油用途に使用することができ、
またこの潤滑油組成物にさらに潤滑油基剤、流動点降下剤などを配合して潤滑油用途に使用することもできる。

- 5 さらに本発明に係る潤滑油組成物には、上述したようなエチレン・プロピレン共重合体（C）と、潤滑油基剤（D）とを含有し、該潤滑油組成物中にエチレン・プロピレン共重合体（C）を1～20重量%、好ましくは5～10重量%の量（残分は潤滑油基剤（D）及び後述の配合剤）で含有するものがある。このような潤滑油組成物
10 は、潤滑油基剤（D）と、エチレン・プロピレン共重合体（C）の合計量100重量%に対し、潤滑油基剤（D）が80～99重量%、エチレン・プロピレン共重合体（C）が1～20重量%であることがより好ましい。

- エチレン・プロピレン共重合体（C）と、潤滑油基剤（D）とを
15 含有する潤滑油組成物は、温度依存性が小さく低温特性に優れる。
この潤滑油組成物は、そのまま潤滑油用途に使用することができ、
またこの潤滑油組成物にさらに潤滑油基剤、流動点降下剤などを配合して潤滑油用途に使用することもできる。

- 本発明に係る潤滑油組成物には、上述したようなエチレン・プロ
20 ピレン共重合体（A）と、潤滑油基剤（D）と、流動点降下剤（E）とを含有し、該潤滑油組成物中に、エチレン・プロピレン共重合体（A）を0.1～5重量%、好ましくは0.3～2重量%の量で、流動点降下剤（E）を0.05～5重量%、好ましくは0.1～2重量%の量（残分は潤滑油基剤（D）及び後述の配合剤）で含有するもの

がある。

潤滑油基剤（D）と、エチレン・プロピレン共重合体（A）と、
流動点降下剤（E）とを含有する潤滑油組成物は、温度依存性が小
さく、かつエチレン・プロピレン共重合体（A）と流動点降下剤（E）
5 との相互作用による流動点の上昇が少なく、あらゆるせん断速度領
域で低温特性に優れる。また、この潤滑油組成物は、GF-3規格
の低温特性の規格を満たしうる。

また本発明に係る潤滑油組成物には、上述したようなエチレン・
プロピレン共重合体（B）と、潤滑油基剤（D）と、流動点降下剤
10 （E）とを含有し、該潤滑油組成物中に、エチレン・プロピレン共
重合体（B）を0.1～5重量%、好ましくは0.3～2重量%の量
で、流動点降下剤（E）を0.05～5重量%、好ましくは0.1～
2重量%の量で含有（残分は潤滑油基剤（D）及び後述の配合剤）
するものがある。

15 エチレン・プロピレン共重合体（B）と、潤滑油基剤（D）と、
流動点降下剤（E）とを含有する潤滑油組成物は、温度依存性が小
さく、かつエチレン・プロピレン共重合体（B）と、流動点降下剤
（E）との相互作用による流動点の上昇が少なく、あらゆるせん断
速度領域で低温特性に優れる。また、この潤滑油組成物は、GF-
20 3規格の低温特性の規格を満たしうる。

さらに本発明に係る潤滑油組成物には、上述したようなエチレン・
プロピレン共重合体（C）と、潤滑油基剤（D）と、流動点降下剤
（E）とを含有し、該潤滑油組成物中に、エチレン・プロピレン共
重合体（C）を0.1～5重量%、好ましくは0.2～1.5重量%の

量で流動点降下剤（E）を0.05～5重量%、好ましくは0.1～2重量%の量で含有（残分は潤滑油基剤（D）及び後述の配合剤）するものがある。

このようなエチレン・プロピレン共重合体（C）と、潤滑油基剤（D）と、流動点降下剤（E）とを含有する潤滑油組成物は、温度依存性が小さく、かつエチレン・プロピレン共重合体（C）と、流動点降下剤（E）との相互作用による流動点の上昇が少なく、あらゆるせん断速度領域で低温特性に優れる。また、この潤滑油組成物は、GF-3規格の低温特性の規格を満たしうる。

10 本発明に係る潤滑油組成物は、上記各成分以外に、メタクリル酸アルキルの（共）重合体、水添SBR、SEBSなどの粘度指数向上効果を有する配合剤、清浄剤、錆止め添加剤、分散剤、極圧剤、消泡剤、酸化防止剤、金属不活性化剤などの配合剤を配合してもよい。

15 潤滑油組成物の調製法

本発明に係る潤滑油組成物は、潤滑油基剤（D）に、エチレン・プロピレン共重合体（A）、（B）もしくは（C）、必要に応じて配合剤を混合または溶解するか、または潤滑油基剤（D）に、エチレン・プロピレン共重合体（A）、（B）もしくは（C）、流動点降下剤（E）、および必要に応じて配合剤を混合または溶解することにより従来公知の方法で調製することができる。

なお、本明細書においては、実施例を除き又は明示しない限り、材料の量、反応条件、分子量、炭素原子数などの全ての数値は、技術的に不明確にならない範囲で「約」という語を補って理解される

ことが好ましい

発明の効果

本発明に係る潤滑油用粘度調整剤は、低温特性に優れた粘度調整
5 剤を製造することができる。

本発明に係る潤滑油組成物は、低温特性に優れており、各種潤滑
油用途に好適である。

実施例

10 以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本
発明はこれら実施例に限定されるものではない。

なお本実施例において各種物性は以下のようにして測定した。

エチレン含量

日本電子 L A 5 0 0 型核磁気共鳴装置を用い、オルトジクロロベン
15 ゼンとベンゼン-d 6 との混合溶媒（オルトジクロロベンゼン／
ベンゼン-d 6 = 3 / 1 ~ 4 / 1（体積比））中、1 2 . 0 ° C、パルス
幅 4 5 ° パルス、パルス繰返し時間 5 . 5 秒で測定した。

1 0 0 ° Cでの粘度（K. V.）

A S T M D 4 4 5 に基づいて測定を行った。なお本実施例では
20 K. V. が 1 0 m m ² / 秒程度となるように調整した。

Cold Cranking Simulator（C C S）

A S T M D 2 6 0 2 に基づいて測定を行った。C C S はクラン
ク軸における低温での撓動性（始動性）の評価に用いられ、値が小
さい程、潤滑油の低温特性がよいことを示す。

Mini-Rotary Viscometer (M R V)

A S T M D 3 8 2 9、D 4 6 8 4に基づいて測定を行った。M R Vはオイルポンプが低温でポンピングを行うための評価に用いられ、値が小さい程、潤滑油の低温特性がよいことを示す。

5 Shear Stability Index (S S I)

A S T M D 3 9 4 5に基づいて測定を行った。S S Iは潤滑油中の共重合体成分が摺動下でせん弾力を受け分子鎖が切断することによる動粘度の損失の尺度であり、S S Iが大きい値である程、損失が大きいことを示す。

10 低温流動性

- 1 8℃で2週間冷却した後の流動性（外観）を観察し、以下のよう

○：流動する ×：流動しない（ゲル状である）

重合例 1

15 [エチレン・プロピレン共重合体の合成]

充分窒素置換した容量2リットルの攪拌翼付連続重合反応器に、脱水精製したヘキサン1リットルを張り、8.0 mmol / リットルに調整したエチルアルミニウムセスキクロリド ($\text{Al}(\text{C}_2\text{H}_5)_{1.5} \cdot \text{Cl}_{1.5}$) のヘキサン溶液を500 ml / hの量で連続的に1時間供給した。その後、触媒として0.8 mmol / リットルに調整した $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)\text{Cl}_2$ のヘキサン溶液を500 ml / hの量で、重合溶媒としてヘキサンを500 ml / hの量で重合反応器に連続的に供給した。一方重合反応器上部から、重合反応器内の重合液が常に1リットルになるように重合液を連続的に抜き出した。またバブリン

グ管を用いて、エチレンを250リットル/hの量で、プロピレンを50リットル/hの量で、水素を5リットル/hの量で重合反応器に供給した。共重合反応は、重合反応器外部に取り付けられたジャケットに冷媒を循環させることにより50℃で行った。

- 5 上記条件で反応を行うと、エチレン・プロピレン共重合体を含む重合溶液が得られた。得られた重合溶液は、塩酸で脱灰した後に、大量のメタノールに投入して、エチレン・プロピレン共重合体を析出させ、得られた共重合体は、130℃で24時間減圧乾燥を行った。得られたポリマーの性状を表1に示す。

10 重合例2

触媒として $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)\text{Cl}_2$ に代えて、 VOCl_3 を用いたこと以外は重合例1と同様に行った。結果を表1に示す。

表 1

		重合例1	重合例2
重 合 条 件	エチレン (ℓ/h)	240	240
	プロピレン (ℓ/h)	60	60
	水素 (ℓ/h)	12	12
ポ リ マ ー 性 状	エチレン含量 (wt%)	75.7	75.6
	Mw (PS換算) × 10 ⁴	18.1	17.8
	Mw/Mn	1.9	2.4
	Tm (℃)	47.2	56.2
	3.44 × E - 206	54.4	54.1
	溶融粘度比 ($\eta_{0.01}^*/\eta_8^*$)	1.17	1.17
	密度 (kg/m ³)	873	873
	1.247 × D - 1037	51.6	51.6

実施例 1

潤滑油基剤として鉱油 100 ニュートラル（商品名、ESSO 社製）と鉱油 150 ニュートラル（商品名、ESSO 社製）との 80 : 20 の混合油を 88.88 重量%、重合例 1 で得られたエチレン・プロピレン共重合体を 0.62 重量%、流動点降下剤としてアクループ 133（商品名、三陽化成社製）を 0.50 重量%、清浄分散剤（ルブリゾール社製）を 10 重量%の割合で含む潤滑油組成物を用いて、潤滑油としての性能評価と低温時の流動性の評価を行った。結果を表 2 に示す。

10 比較例 1

潤滑油基剤、エチレン・プロピレン共重合体の種類を変えたこと以外は実施例 1 と同様に行った。結果を表 2 に示す。

表 2

15

20

		実施例 1	比較例 1
エチレン・プロピレン共重合体種類		重合例 1	重合例 2
配合割合 (重量%)	潤滑油基剤	88.88	88.88
	清浄分散剤	10.00	10.00
	エチレン・プロピレン共重合体	0.50	0.50
	流動点降下剤	0.62	0.62
潤滑油性能	K. V. @100℃ (mm ² /s)	10.02	10.01
	SSI	23.0	23.0
	CCS	2,790	2,820
	M R V	25,500	32,100
	低温流動性	○	×
	潤滑油外観	無色透明	白濁

重合例 3

[エチレン・プロピレン共重合体の合成]

充分窒素置換した容量 2 リットルの攪拌翼付連続重合反応器に、脱水精製したヘキサン 1 リットルを張り、8.0 mmol / リットルに調整したエチルアルミニウムセスキクロリド ($\text{Al}(\text{C}_2\text{H}_5)_{1.5} \cdot \text{Cl}_{1.5}$) のヘキサン溶液を 500 ml / h の量で連続的に 1 時間供給した。その後、触媒として 0.8 mmol / リットルに調整した $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)\text{Cl}_2$ のヘキサン溶液を 500 ml / h の量で、重合溶媒としてヘキサンを 500 ml / h の量で重合反応器に連続的に供給した。一方重合反応器上部から、重合反応器内の重合液が常に 1 リットルになるように重合液を連続的に抜き出した。またバブリング管を用いて、エチレンを 250 リットル / h の量で、プロピレンを 50 リットル / h の量で、水素を 5 リットル / h の量で重合反応器に供給した。共重合反応は、重合反応器外部に取り付けられたジャケットに冷媒を循環させることにより 35℃で行った。

上記条件で反応を行うと、エチレン・プロピレン共重合体を含む重合溶液が得られた。得られた重合溶液は、塩酸で脱灰した後に、大量のメタノールに投入して、エチレン・プロピレン共重合体を析出させ、得られた共重合体は、130℃で 24 時間減圧乾燥した。得られた共重合体の性状を表 1 に示す。

重合例 4 ~ 6

エチレン、プロピレンおよび水素のフィード量を表 3 に示したように変えたこと以外は重合例 1 と同様に行った。結果を表 3 に示す。

表 3

		重合例 3	重合例 4	重合例 5	重合例 6
5	重合条件				
	エチレン (ℓ/h)	250	240	230	220
	プロピレン (ℓ/h)	50	60	70	80
	水素 (ℓ/h)	5	5	4	4
10	ポリマー性状				
	エチレン含量 (wt%)	80.2	75.4	70.5	66.2
	Mw (PS換算) × 10 ⁴	30.7	29.2	30.2	28.5
	Mw/Mn	1.9	1.9	2.0	2.0
	Tm (°C)	62.8	45.1	30.2	14.1
	3.44 × E - 204	71.9	55.4	38.5	23.7
	熔融粘度比 ($\eta_{0.01}^*/\eta_8^*$)	2.05	1.87	1.93	1.71
	密度 (kg/m ³)	887	872	859	未測定
	1.247 × D - 1037	69.1	50.4	34.2	未測定

実施例 2

潤滑油基剤として、鉱油 100 ニュートラル（商品名、ESSO 社製）と、鉱油 150 ニュートラル（商品名、ESSO 社製）との 80 : 20 の混合油を 89.04 重量%、重合例 4 で得られたエチレン・プロピレン共重合体を 0.46 重量%、流動点降下剤としてアクループ 133（商品名、三陽化成社製）を 0.5 重量%、清浄分散剤（ルブリゾール社製）を 10 重量%の割合で含む潤滑油組成物を用いて、潤滑油としての性能評価と低温時の流動性の評価を行った。結果を表 4 に示す。

実施例 3、比較例 2、3

潤滑油基剤、エチレン・プロピレン共重合体の種類および配合量を変えたこと以外は実施例 1 と同様に行った。結果を表 2 に示す。

表 4

		実施例 2	実施例 3	比較例 2	比較例 3
エチレン・プロピレン共重合体種類		重合例 4	重合例 5	重合例 3	重合例 6
5 配合割合 (重量%)	潤滑油基剤	89.04	89.04	89.05	89.00
	清浄分散剤	10.00	10.00	10.00	10.00
	エチレン・プロピレン共重合体	0.50	0.50	0.50	0.50
	流動点降下剤	0.46	0.46	0.45	0.50
10 潤滑油性能	K. V. @ 100℃ (mm ² /s)	10.02	10.05	10.02	10.04
	S S I	45.0	46.0	45.0	43.5
	C C S	2,620	2,820	2,600	2,850
	M R V	21,000	44,500	21,200	固 化
	低温流動性	○	○	×	○

請 求 の 範 囲

1.

下記 (a-1) ないし (a-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (A) からなることを特徴とする潤滑油用粘度調整剤；

- 5 (a-1) 密度が $857 \sim 882 \text{ kg/m}^3$ の範囲にあること、
(a-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が $80,000 \sim 400,000$ の範囲にあること、
(a-3) 分子量分布を示す指標である M_w/M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、
10 (a-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ の範囲にあること、
(a-5) 密度 ($D : \text{kg/m}^3$) と、示差走査型熱量計で測定した融点 ($T_m : ^\circ\text{C}$) とが下記の関係式 (I)

15
$$T_m \leq 1.247 \times D - 1037 \quad \dots (I)$$

を満たすこと。

2.

下記 (b-1) ないし (b-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (B) からなることを特徴とする潤滑油用粘度調整剤；

- 20 (b-1) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合が $70 \sim 79$ 重量% の範囲にあること、
(b-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が $80,000$ 以上かつ $250,000$ 未満であること、

(b-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(b-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ の範囲にあること、

- 5 (b-5) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合 (E : 重量%) と示差走査型熱量計で測定した融点 (T_m : $^\circ\text{C}$) とが下記の関係式 (II)

$$3.44 \times E - 206 \geq T_m \quad \dots (II)$$

を満たすこと。

10 3.

下記 (c-1) ないし (c-5) の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体 (C) からなることを特徴とする潤滑油用粘度調整剤；

(c-1) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合が $70 \sim 79$ 重量% の範囲にあること、

- 15 (c-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が $250,000 \sim 400,000$ の範囲にあること、

(c-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

- 20 (c-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ の範囲にあること、

(c-5) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合 (E : 重量%) と示差走査型熱量計で測定した融点 (T_m : $^\circ\text{C}$) とが下記の関係式 (III)

$$3.44 \times E - 204 \geq T_m \quad \dots (III)$$

を満たすこと。

4.

(A) エチレン・プロピレン共重合体と、

5 (D) 潤滑油基剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) を 1 ～ 20 重量 % の割合で含み、かつ上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) が下記 (a-1) ないし (a-5) の特性を有することを特徴とする潤滑油組成物；

(a-1) 密度が $857 \sim 882 \text{ kg/m}^3$ の範囲にあること、

10 (a-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が $80,000 \sim 400,000$ の範囲にあること、

(a-3) 分子量分布を示す指標である M_w/M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

15 (a-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ の範囲にあること、

(a-5) 密度 ($D : \text{kg/m}^3$) と、示差走査型熱量計で測定した融点 ($T_m : ^\circ\text{C}$) とが下記の関係式 (I)

$$T_m \leq 1.247 \times D - 103.7 \quad \dots (I)$$

20 を満たすこと。

5.

(B) エチレン・プロピレン共重合体と、

(D) 潤滑油基剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) を 1 ～ 20 重量 % の割合

で含み、かつ上記エチレン・プロピレン共重合体（B）が下記（b-1）ないし（b-5）の特性を有することを特徴とする潤滑油組成物；

（b-1）エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合が70～79重量％の範囲にあること、

- 5 （b-2）ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が80,000以上かつ250,000未満であること、

（b-3）分子量分布を示す指標である M_w/M_n （ M_w ：重量平均分子量、 M_n ：数平均分子量）が2.3以下であること、

- 10 （b-4）示差走査型熱量計で測定した融点が15～60℃の範囲にあること、

（b-5）エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合（E：重量％）と示差走査型熱量計で測定した融点（ T_m ：℃）とが下記の関係式（II）

$$15 \quad 3.44 \times E - 206 \geq T_m \quad \dots (II)$$

を満たすこと。

6.

（C）エチレン・プロピレン共重合体と、

（D）潤滑油基剤とを含有し、

- 20 上記エチレン・プロピレン共重合体（C）を1～20重量％の割合で含み、かつ上記エチレン・プロピレン共重合体（C）が下記（c-1）ないし（c-5）の特性を有することを特徴とする潤滑油組成物；

（c-1）エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合が70～79重量％の範囲にあること、

(c-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が 250,000 ~ 400,000 の範囲にあること、

(c-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(c-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が 15 ~ 60 °C の範囲にあること、

(c-5) エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合 (E : 重量%) と示差走査型熱量計で測定した融点 (T_m : °C) とが下記の関係式
10 (III)

$$3.44 \times E - 204 \geq T_m \quad \dots (III)$$

を満たすこと。

7.

(A) エチレン・プロピレン共重合体と、

15 (D) 潤滑油基剤と、

(E) 流動点降下剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) を 0.1 ~ 5 重量% の割合で含有し、上記流動点降下剤 (E) を 0.05 ~ 5 重量% の割合で含有し、かつ上記エチレン・プロピレン共重合体 (A) が下記 (a-1)

20 ないし (a-5) の特性を有することを特徴とする潤滑油組成物；

(a-1) 密度が 857 ~ 882 kg/m³ の範囲にあること、

(a-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が 80,000 ~ 400,000 の範囲にあること、

(a-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(a-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ の範囲にあること、

- 5 (a-5) 密度 ($D : \text{kg} / \text{m}^3$) と、示差走査型熱量計で測定した融点 ($T_m : ^\circ\text{C}$) とが下記の関係式 (I)

$$T_m \leq 1.247 \times D - 103.7 \quad \dots (I)$$

を満たすこと。

8.

- 10 (B) エチレン・プロピレン共重合体と、

(D) 潤滑油基剤と、

(E) 流動点降下剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) を 0.1 ~ 5 重量% の割合で含有し、上記流動点降下剤 (E) を 0.05 ~ 5 重量% の割合で含

- 15 有し、かつ上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) が下記 (b-1) ないし (b-5) の特性を有することを特徴とする潤滑油組成物；

(b-1) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合が $70 \sim 79$ 重量% の範囲にあること、

- (b-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が $80,000$ 以上かつ $250,000$ 未満であること、
- 20

(b-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(b-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が $15 \sim 60^\circ\text{C}$ の範囲にあ

ること、

(b-5) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合 (E : 重量%) と示差走査型熱量計で測定した融点 (T_m : °C) とが下記の関係式 (II)

$$5 \quad 3.44 \times E - 206 \geq T_m \quad \cdots (II)$$

を満たすこと。

9.

(C) エチレン・プロピレン共重合体と、

(D) 潤滑油基剤と、

10 (E) 流動点降下剤とを含有し、

上記エチレン・プロピレン共重合体 (C) を 0.1 ~ 5 重量% の割合で含有し、上記流動点降下剤 (E) を 0.05 ~ 5 重量% の割合で含有し、かつ上記エチレン・プロピレン共重合体 (C) が下記 (c-1) ないし (c-5) の特性を有することを特徴とする潤滑油組成物；

15 (c-1) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合が 70 ~ 79 重量% の範囲にあること、

(c-2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したポリスチレン換算の重量平均分子量が 250,000 ~ 400,000 の範囲にあること、

20 (c-3) 分子量分布を示す指標である M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) が 2.3 以下であること、

(c-4) 示差走査型熱量計で測定した融点が 15 ~ 60 °C の範囲にあること、

(c-5) エチレンから導かれる繰り返し単位の含有割合 (E : 重量%)

と示差走査型熱量計で測定した融点 ($T_m : ^\circ\text{C}$) とが下記の関係式
(III)

$$3.44 \times E - 204 \geq T_m \quad \cdots \text{(III)}$$

を満たすこと。